

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-003147

(43)Date of publication of application : 09.01.1996

(51)Int.Cl.

C07D271/10  
 C07D413/14  
 C07D413/14  
 C07D413/14  
 C07D413/14  
 C07D413/14  
 H05B 33/14  
 H05B 33/26  
 // C09K 11/06  
 (C07D413/14  
 C07D271:10  
 C07D333:10 )  
 (C07D413/14  
 C07D213:16  
 C07D271:10 )  
 (C07D413/14  
 C07D209:32  
 C07D271:10 )  
 (C07D413/14  
 C07D215:04  
 C07D271:10 )  
 (C07D413/14  
 C07D271:10  
 C07D307:79 )

(21)Application number : 06-158075

(71)Applicant : RICOH CO LTD

(22)Date of filing : 16.06.1994

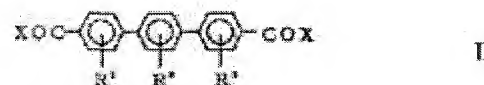
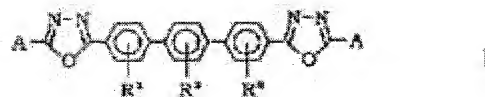
(72)Inventor : NAGAI KAZUKIYO  
 ADACHI CHIHAYA  
 TAMOTO NOZOMI

## (54) OXADIAZOLE COMPOUND AND ITS PRODUCTION

(57)Abstract:

**PURPOSE:** To obtain a new compound having stable film-producing property as a material for organic electroluminescent elements, especially useful as a luminous material, an electron transporting material, etc., and having long-term storage stability.

**CONSTITUTION:** This compound of formula I [A is a (substituted)aromatic or a (substituted)aromatic heterocycle; R1 to R3 are each H, a halogen, a (substituted)alkyl, a (substituted)alkoxy or hydroxyl] is obtained by reacting an acid halide compound of formula II (X is a halogen) with a tetrazole compound of formula III or formula IV. Furthermore, the acid halide compound is synthesized by treating a carboxylic acid compound of formula V with a halogenating agent such as thionyl chloride or phosphorus pentachloride.



(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平8-3147

(43)公開日 平成8年(1996)1月9日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 7 D 271/10				
413/14	2 0 9			
	2 1 3			
	2 1 5			
	3 0 7			

審査請求 未請求 請求項の数2 F D (全 10 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平6-158075

(22)出願日 平成6年(1994)6月16日

(71)出願人 000006747

株式会社リコー

東京都大田区中馬込1丁目3番6号

(72)発明者 永井 一清

東京都大田区中馬込1丁目3番6号 株式会社リコー内

(72)発明者 安達 千波矢

東京都大田区中馬込1丁目3番6号 株式会社リコー内

(72)発明者 田元 望

東京都大田区中馬込1丁目3番6号 株式会社リコー内

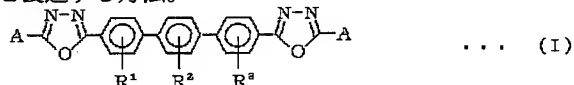
(74)代理人 弁理士 池浦 敏明 (外1名)

(54)【発明の名称】 オキサジアゾール化合物およびその製造方法

(57)【要約】 (修正有)

【目的】 経時安定性に優れ、高信頼性有機電界発光用材料、特に電子輸送材料として有用であり、しかも良好な薄膜形成が可能な、新規オキサジアゾール化合物、及びその製造方法を提供する。

【構成】 一般式(I)で表されるオキサジアゾール化合物および、酸ハライド化合物とテトラゾール化合物とを反応させることにより、当該オキサジアゾール化合物を製造する方法。



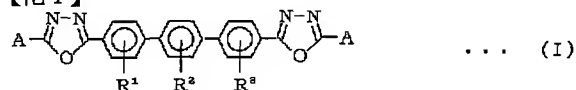
〔式中、Aは芳香族炭化水素基もしくは芳香族複素環基を表し；R<sup>1</sup>，R<sup>2</sup>，R<sup>3</sup>は水素原子、ハロゲン原子、アルキル基、アルコキシ基、ヒドロキシ基を表す〕

1

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 下記一般式 (I) (化 1) で表されるオキサジアゾール化合物。

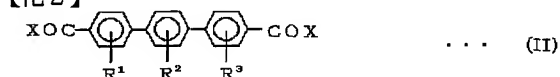
## 【化 1】



(式中、A は、各々置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基を表し、それぞれ同じでも異なっても良い。又、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$  は、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、ヒドロキシル基を表し、それぞれ同じでも異なっても良い。)

【請求項 2】 下記一般式 (II) (化 2)

## 【化 2】



(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$  は、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、ヒドロキシル基を表し、それぞれ同じでも異なっても良い。X はハロゲン原子を表す。) で表される酸ハライド化合物を、下記一般式 (III)

(化 3) あるいは一般式 (IV) (化 4)

## 【化 3】

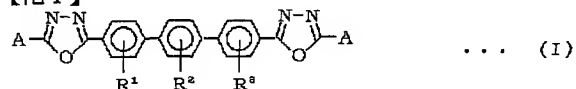


## 【化 4】



(式中、A は、各々置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基を表す。) で表されるテトラゾール化合物とを反応させて下記一般式 (I) (化 1)

## 【化 1】



(式中、A は、各々置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基を表し、それぞれ同じでも異なっても良い。又、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$  は、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、ヒドロキシル基を表し、それぞれ同じでも異なっても良い。) で表されるオキサジアゾール化合物を製造することを特徴とするオキサジアゾール化合物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

2

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、蛍光増白剤として、あるいは有機電界発光素子用材料、特に電子輸送材料として有用な、新規オキサジアゾール化合物、及びその製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】有機電界発光素子用の材料として種々のオキサジアゾール化合物が知られている。例えば、日本化学会誌、1991、(11)、p. 1540-1548 には発光材料及び電子輸送材料としてオキサジアゾール化合物を使用した例が記載されている。また、特開平 3-205479 号公報、特開平 4-212286 号公報、特開平 4-363891 号公報、特開平 4-363894 号公報にもオキサジアゾール化合物を使用した例が記載されている。しかしながら、未だに薄膜の安定性に問題があり、高輝度、高信頼性の有機電界発光素子は得られていない。

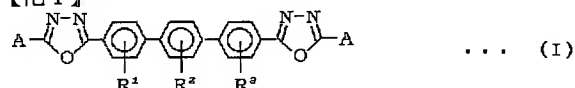
## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、有機電界発光素子用の材料として、安定した製膜性を有し、特に発光材料、電子輸送材料等として有用であり、しかも長期保存によっても変質しにくい新規オキサジアゾール化合物およびその製造方法を提供することを目的とする。

## 【0004】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、前記課題を解決するため鋭意検討した結果、ある特定の構造を有するオキサジアゾール化合物が有効であることを見出し、本発明を完成するに至った。すなわち、本発明によれば、下記一般式 (I) (化 1) で表わされるオキサジアゾール化合物が提供される。

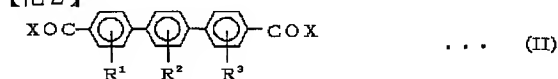
## 【化 1】



(式中、A は、各々置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基を表し、それぞれ同じでも異なっても良い。又、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$  は、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、ヒドロキシル基を表し、それぞれ同じでも異なっても良い。)

また、下記一般式 (II) (化 2)

## 【化 2】



(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$  は、水素原子、ハロゲン原子、置換もしくは無置換のアルキル基、置換もしくは無置換のアルコキシ基、ヒドロキシル基を表し、それぞれ同じでも異なっても良い。X はハロゲン原子を表

3

す。)で表される酸ハライド化合物を、下記一般式 (II) (化3) あるいは一般式 (IV) (化4)

【化3】



【化4】



(式中、Aは、各々置換もしくは無置換の芳香族炭化水素基、置換もしくは無置換の芳香族複素環基を表す。)で表されるテトラゾール化合物とを反応させて前記一般式 (I) (化1) で表されるオキサジアゾール化合物を製造することを特徴とするオキサジアゾール化合物の製造方法が提供される。

【0005】前記一般式 (I) において、Aにおける芳香族炭化水素基あるいは芳香族複素環基の具体例としては、スチリル、フェニル、ビフェニル、ターフェニル、ナフチル、アントリル、アセナフテニル、フルオレニル、フェナントリル、インデニル、ピレニル、ピリジル、ピリミジル、フラニル、ピロニル、チオフェニル、キノリル、ベンゾフラニル、ベンゾチオフェニル、インドリル、カルバゾリル、ベンゾオキサゾリル、キノキサリル、ベンゾイミダゾリル、ピラゾリル、ジベンゾフラニル、ジベンゾチオフェニル、オキサゾリル、オキサジアゾリル基等が挙げられる。

【0006】これらの芳香族炭化水素基あるいは芳香族複素環基は更に一つ以上のハロゲン原子、水酸基、シアノ基、ニトロ基、アミノ基、トリフルオロメチル基、炭素数1から12、好ましくは1から6のアルキル基、炭素数1から12、好ましくは1から6のアルコキシ基、アリールオキシ基、フェニル基、スチリル基、ナフチル基、チオフェニル基、アラルキル基、ビフェニル基、ビチオフェニル基、フラニル基、ピラニル基、ピロニル基、ビピロニル基、等の置換基を有していてもよい。

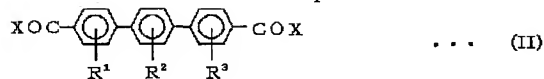
【0007】また、前記一般式 (I) において、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ における置換もしくは無置換のアルキル基としては、炭素数1~12、好ましくは1~6のアルキル基が挙げられ、その置換基としては、ハロゲン原子、水酸基、フェニル基、アルコキシ基又はアミノ基等が挙げられる。置換もしくは無置換のアルコキシ基としては、炭素数1~12、好ましくは1~6のアルコキシ基が挙げられ、その置換基としては、ハロゲン原子、水酸基、又はアミノ基等が挙げられる。

【0008】一般式 (I) で表される本発明のオキサジアゾール化合物は、前記した如く、下記一般式 (II)

(化2)

【化2】

4



(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ 及びXは前記に同じ。)で表される酸ハライド化合物を、下記一般式 (III) (化3) あるいは一般式 (IV) (化4)

【化3】



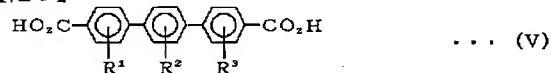
【化4】



(式中、Aは、前記に同じ。)で表されるテトラゾール化合物とを反応させることにより得られる。

【0009】一般式 (II) (化2) で表される酸ハライド化合物は、下記一般式 (V) (化5)

【化5】



(式中、 $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$ は前記に同じ。)で表されるカルボン酸化合物を塩化チオニル、五塩化リン、ホスゲン、塩化アルミニウム等のハロゲン化剤で処理することにより合成される。

【0010】一般式 (III) (化3) 及び一般式 (IV) (化4) のテトラゾール化合物は互変異性の関係にあって互に変化しやすく、別々に取り出すことが困難なものであり、両者が混在したものであるのが一般的であり、本発明でも混在したものを使用できる。ここで使用される一般式 (III) (化3) 及び一般式 (IV) (化4) で表されるテトラゾール化合物は従来公知の方法で製造される。例えば、Synthesis 71 (1973) に記載の方法で合成できる。

【0011】また、一般式 (II) (化2) で表される酸ハライドと一般式 (III) (化3) 及び一般式 (IV)

(化4) で表されるテトラゾール化合物との反応は、R. D. Huisgenらのオキサジアゾール合成法に準じて行われる。例えば、Angew. Chem., 72, 366 (1960), Chem. Ber., 93, 2106 (1960), Tetrahedron, 11, 241 (1960), Chem. Ber., 98, 2966 (1965) に記載の方法を適用することができる。

【0012】反応はテトラゾール基とハロゲン化カルボニル基との反応であり、一般式 (II) (化2) で表される化合物と一般式 (III) (化3) 及び一般式 (IV)

(化4) で表される化合物の前記官能基が交換された原料からも一般式 (I) (化1) で表されるオキサジアゾール化合物を合成することができる。すなわち下記一般

10

20

30

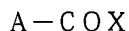
40

50

式 (VI) (化 6) で表されるテトラゾール化合物と一般式 (VII) (化 7) との反応によっても一般式 (I)

(化 1) で表されるオキサジアゾール化合物を合成することができる。

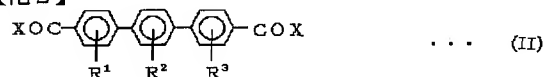
【化 6】



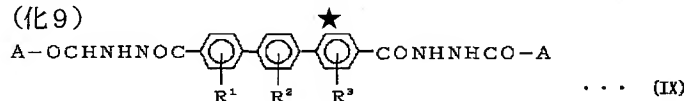
(式中、A は前記に同じ。X はハロゲン原子を表す。)

【0013】また、一般式 (I) (化 1) で表されるオキサジアゾール化合物は次の反応によっても合成することができる。すなわち、下記一般式 (II) (化 2)

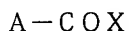
【化 2】



(式中、A は前記に同じ。) で表される化合物とを反応させて、下記一般式 (IX) (化 9)

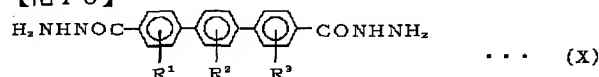


(式中、A、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup> は上記に同じ。) で表される化合物を製造し、さらに脱水反応を行うことにより、前記一般式 (I) (化 1) で表されるオキサジアゾール化合物を製造することができる。



(式中、A、X は前記に同じ。) で表される化合物と、下記一般式 (X) (化 10)

【化 10】

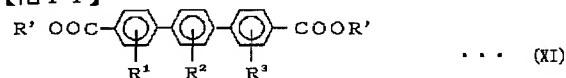


(式中、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup> は前記に同じ。) で表される化合物とを反応させて、前記一般式 (IX) (化 9) で表される化合物を製造し、さらに脱水反応を行うことにより、前記一般式 (I) (化 1) で表されるオキサジアゾール化合物を製造することができる。

【0015】出発原料として使用される一般式 (X)

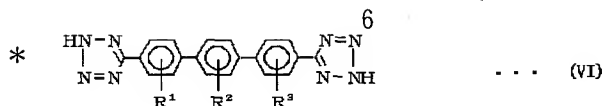
(化 10) で表される化合物は下記一般式 (XI) (化 11)

【化 11】



(式中、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup> は前記に同じ、R' はアルキル基を表す。) で表されるエステル誘導体と、ヒドラジンとの反応により容易に製造することができる。

【0016】前記一般式 (IX) (化 9) で表される化合物の前記 2 種の合成工程は通常塩基性触媒の存在下で行なわれる。塩基性触媒としては、ピリジン、及びその誘導体、トリエチルアミン、トリブチルアミン、トリエタ



(式中、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup> は前記に同じ。)

【化 7】



※ (式中、R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、X は前記に同じ。) で表される酸ハライド化合物と、下記一般式 (VIII) (化 8) の化合物

10 【化 8】



★【化 9】

☆【0014】更にまた、一般式 (I) (化 1) で表されるオキサジアゾール化合物は、下記一般式 (VII) (化 7)

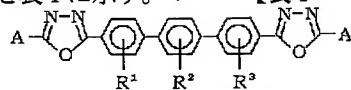
【化 7】



ノールアミン、キノリン、ピペラジン、モルホリンなどの有機塩基あるいは水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウムなどの無機塩基が挙げられるが、特に有機の塩基性触媒が好ましい。該工程の反応溶媒としては前記一般式 (IX) (化 9) で表される化合物を少しでも溶解するものであればすべてのものが使用できるが、エタノール、ブタノール等のアルコール系溶媒、ジオキサン、テトラヒドロフラン等のエーテル系溶媒、ベンゼン、トルエン、クロロベンゼン、ニトロベンゼン等の芳香族系溶媒、N、N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド等が好ましい。又、前記したピリジン等の有機の塩基性触媒を過剰に用い、溶媒としても良い。

40 【0017】また、前記一般式 (IX) (化 9) で表される化合物を脱水反応させ、閉環させる工程は、オキシ塩化リン、塩化チオニル、ポリリン酸、ホウ酸、トルエンスルホン酸等の脱水剤の存在下に行なう。この時の反応溶媒としては前記工程で示した溶媒が使用できるが、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、キシレン、ニトロベンゼン等の芳香族系溶媒、トリクロロエタン、トリクロロメタン等のハロゲン系溶媒等が特に好ましい。脱水剤の使用量は出発原料化合物 1 モルに対して 1 モルから 10 モル程度が適切であるが、例えば、オキシ塩化リンを大過剰に用い、溶媒としても良い。通常、反応は、50

【0018】本発明に係わる一般式(I) (化1) で表 \* 【0019】  
 されるオキサジアゾール化合物の具体例を表1に示す。 \* 【表1-(1)】

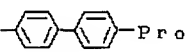

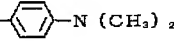
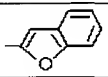
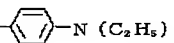
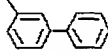
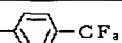
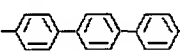

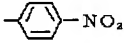

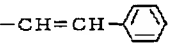

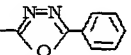

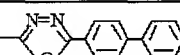

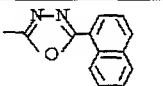
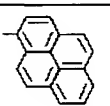
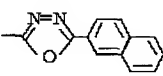
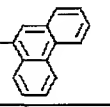
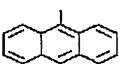



R¹, R², R³ = 水素原子の場合

No.	A	No.	A	No.	A
1		10		19	
2		11		20	
3		12		21	
4		13		22	
5		14		23	
6		15		24	
7		16		25	
8		17		26	
9		18		27	

【0020】

【表1-(2)】

9		10	
No.	A	No.	A
28		40	
29		41	
30		42	
31		43	
32		44	
33		45	
34		46	
35		47	
36		48	
37		49	
38		50	
39			

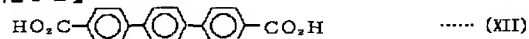
【0021】本発明の一般式 (I) で示されるオキサジアゾール化合物は、有機電界発光素子の構成成分として特に優れており、例えば、真空蒸着法、溶液塗布法等により薄膜化し、陽極及び陰極で直接または間接的に挟持することにより素子を得ることができる。

【0022】

【実施例】以下、本発明を実施例に基づいて更に詳細に説明する。尚、本発明はこれら実施例により限定されるものではない。

【0023】合成例 1 下記構造式 (化 12) で表される化合物の合成 [一般式 (V), R=H]

【化 12】

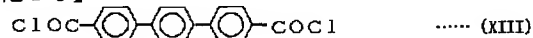


無水塩化アルミニウム 8.75 g とジクロロメタン 88 ml を反応容器に入れ、ドライアイス、アセトンによりマイナス 50℃ まで冷却した後、攪拌しながら塩化オキサリル 25 g を滴下しアシル化剤を調製した。その後パラターフェニル 7.56 g を冷却したまま添加し、徐々に温度を上げ、マイナス 35℃ で 30 分攪拌した後ゆっ

くりと室温まで昇温させた。室温でしばらく攪拌した後、一晩放置した。その後、約 300 g の水に反応液をあけ、析出した黄色の生成物を濾過、水洗して 10 g 得た。この生成物の融点は 300℃ 以上であり、赤外線吸収スペクトル (KBr 錠剤法) ではカルボン酸の OH 伸縮振動に帰属される 3100-2500 cm<sup>-1</sup> の幅広い吸収と CO 伸縮振動に帰属される 1680 cm<sup>-1</sup> の吸収が観察された。

【0024】合成例 2 下記構造式 (化 13) で表される化合物の合成 [一般式 (II), R=H, X=Cl]

【化 13】

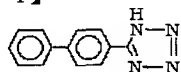


合成例 1 で得られたカルボン酸 10 g と塩化チオニル 78 g とピリジン 3.5 ml を反応容器に入れ、40 時間加熱還流した。その後未反応の塩化チオニルを蒸留で除き、煮沸ベンゼンで抽出を行い、黄色板状晶の目的生成物 4.09 g (収率 35%) を得た。この生成物の融点を測定したところ 215℃ で融け始めその後固化した。赤外線吸収スペクトル (KBr 錠剤法) では塩化カルボ

ニル基のC O伸縮振動に帰属される $1775\text{ cm}^{-1}$ の吸収が観測された。

【0025】合成例3 下記構造式(化14)で表わされる化合物の合成〔一般式(III), A=ビフェニル-4-イル〕

【化14】

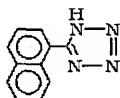


.....(XIV)

p-シアノビフェニル20.0gとアジ化ソーダ7.98gと塩化アンモニウム6.57gを反応容器に入れ、溶媒としてN,N-ジメチルホルムアミドを55ml加え、 $100^{\circ}\text{C}\sim 110^{\circ}\text{C}$ にて15時間加熱還流した。放冷後、水500mlに反応物を注ぎ、濾過し、水500mlで水洗を行い、粗生成物24.0g(収率96.8%)を得た。これをジオキサン650mlにて再結晶を行い、9.94g(収率40.1%)の白色粉末物を得た。この化合物の分解点は $239.5^{\circ}\text{C}\sim 240.3^{\circ}\text{C}$ であった。赤外線吸収スペクトルは、 $3200\text{ cm}^{-1}\sim 2500\text{ cm}^{-1}$ にかけてテトラゾールのN-H伸縮振動に帰属されるブロードなピークが観察され、目的物であることを確認した。

【0026】合成例4 下記構造式(化15)で表わされる化合物の合成〔一般式(III), A=1-ナフチル〕

【化15】



.....(XV)

\*30

	C (%)	H (%)	N (%)
実測値	79.23	4.12	10.82
計算値	78.75	4.28	10.80

【0029】合成例6 化合物No. 22の合成〔一般式(I) A=フェニル, R=H〕

合成例2で得られた酸クロリド化合物1.0gと合成例4で得られたテトラゾール化合物1.16gを反応容器に入れ、モレキュラシープで脱水処理したピリジン40mlを溶媒として加え、35時間加熱還流した。放冷後、メタノール70mlを加え、析出物を濾過、メタノール洗浄して粗生成物1.32gを得た。この化合物を真空度10Paのアルゴンガス気流下の温度勾配管の中

\*  $\alpha$ -ナフトニトリル30gとアジ化ソーダ14.01gと塩化アンモニウム11.52gを反応容器に入れ、溶媒としてN,N-ジメチルホルムアミド82mlを加え、 $100^{\circ}\text{C}\sim 110^{\circ}\text{C}$ にて24時間加熱還流した。その後、エバポレータで溶媒を除き、水450mlを加え、塩酸でpH=1とした後濾過、水洗して粗生成物34.95gを得た。これをジオキサンとトルエンの混合溶媒で再結晶し、さらにメタノールと水で再沈殿を行い、白色粉末状の目的生成物25.97gを得た(収率67.6%)。この化合物の分解点は $215.0^{\circ}\text{C}\sim 215.6^{\circ}\text{C}$ であった。

【0027】合成例5 化合物No. 1の合成〔一般式(I) A=フェニル, R=H〕

合成例2で得られた酸クロリド化合物1.0gと5-フェニル-1H-テトラゾール0.9gを反応容器に入れ、モレキュラシープで脱水処理したピリジン30mlを溶媒として加え、25時間加熱還流した。放冷後、メタノール80mlを加え、析出物を濾過、メタノール洗浄して粗生成物1.24gを得た。その後、N,N-ジメチルホルムアミド100mlで再結晶し、無色板状晶の目的生成物0.71g(収率49%)を得た。この物の融点は $312^{\circ}\text{C}$ (DTAピーク値)であった。赤外線吸収スペクトル(KBr錠剤法)を図1に示す。

【0028】

【表2】 元素分析値( $\text{C}_{34}\text{H}_{22}\text{N}_4\text{O}_2$ として計算)

で $370^{\circ}\text{C}$ に加熱して昇華精製を行った。さらにN,N-ジメチルホルムアミド200mlで再結晶を行い、淡黄色針状晶の目的生成物0.18g(収率10.4%)を得た。この化合物の融点は $312^{\circ}\text{C}$ (DTAピーク値)であった。赤外線吸収スペクトル(KBr錠剤法)を図2に示す。

【0030】

【表3】 元素分析値( $\text{C}_{42}\text{H}_{26}\text{N}_4\text{O}_2$ として計算)



	C (%)	H (%)	N (%)
実測値	81.66	4.05	9.14
計算値	81.54	4.24	9.06

【0031】合成例7 化合物No. 26の合成〔一般式 (I) A=4-ピフェニルイル, R=H〕

合成例2で得られた酸クロリド化合物1.0gと合成例3で得られたテトラゾール化合物1.25gを反応容器に入れ、モレキュラシーブで脱水処理したピリジン45mlを溶媒として加え、36時間加熱還流した。放冷後、メタノール80mlを加え、析出物を濾過、メタノール洗浄して粗生成物1.62gを得た。その後、N、N-ジメチルホルムアミド中に分散しながら約10時間\*

\*煮沸洗浄した。その後、真空度10Paのアルゴンガス気流下の温度勾配管の中で約420℃に加熱して昇華精製を行い、白色粉末状の目的生成物0.6g(収率31.8%)を得た。この物の融点は390℃(DTAピーク値)であった。赤外線吸収スペクトル(KBr錠剤法)を図3に示す。

【0032】

【表4】 元素分析値 (C<sub>46</sub>H<sub>30</sub>N<sub>4</sub>O<sub>2</sub>として計算)

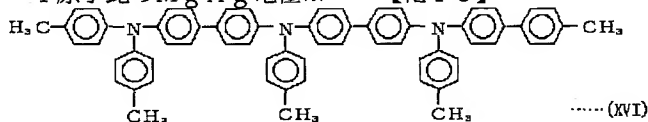
	C (%)	H (%)	N (%)
実測値	82.67	4.46	8.42
計算値	82.37	4.51	8.35

【0033】

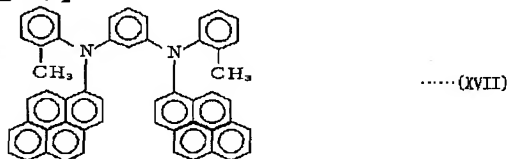
【応用例1】ガラス基板上に大きさ2mm×2mm、厚さ1700nmの酸化錫インジウム(ITO)による陽極を形成し、その上に下記式(XVI)(化16)で示されるジアミン誘導体からなるホール輸送層40nm、下記式(XVII)(化17)で示されるジアミン誘導体からなる発光層15nm、前記化合物No. 1からなる電子輸送層20nm、下記式(XVIII)(化18)で示される電子輸送層30nm、10:1原子比のMgAg電極※

※を300nm、各々真空蒸着により形成し、電界発光素子を作製した。蒸着時の真空度は $0.7 \times 10^{-6}$  Torrであり、基板温度は室温である。このようにして作製した素子の陽極及び陰極にリード線を介して直流電源を接続したところ、電流密度200mA/cm<sup>2</sup>において印加電圧が13Vであり、輝度5000cd/m<sup>2</sup>の青色の発光が観測された。なお、この素子は3ヵ月保存後においても明瞭に発光が確認された。

【化16】



【化17】



【化18】



は応用例1と同様にして電界発光素子を作製した。作製した素子の陽極及び陰極にリード線を介して直流電源を接続したところ、電流密度450mA/cm<sup>2</sup>において印加電圧が12.5Vであり、輝度10000cd/m<sup>2</sup>の青色の発光が観察された。なお、この素子は3ヶ月保存後においても明瞭に発光が確認された。

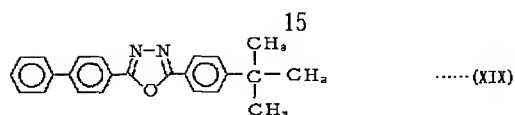
【0035】比較例

前記化合物No. 1の代わりに下記化合物(XIX)(化19)を用いた以外は応用例1と同様にEL素子を作製した。この素子に直流電圧を印加したところ、明瞭な青色の発光が認められた。しかし、1ヶ月保存後においては、EL発光は認められなかった。

【化19】

【0034】応用例2

前記化合物No. 1の代りに化合物No. 26する以外



## 【0036】

【発明の効果】本発明のオキサジアゾール化合物は新規化合物であって、蒸着等によって容易に均質な透明膜を形成することができ、有機電界発光素子用の電子輸送材料としての優れた機能も備えており、且つ経時での変質が少ないので高信頼性有機電界発光用材料として有用である。また、本発明により、該オキサジアゾール化合物の有利な製造法を提供することができる。

\*

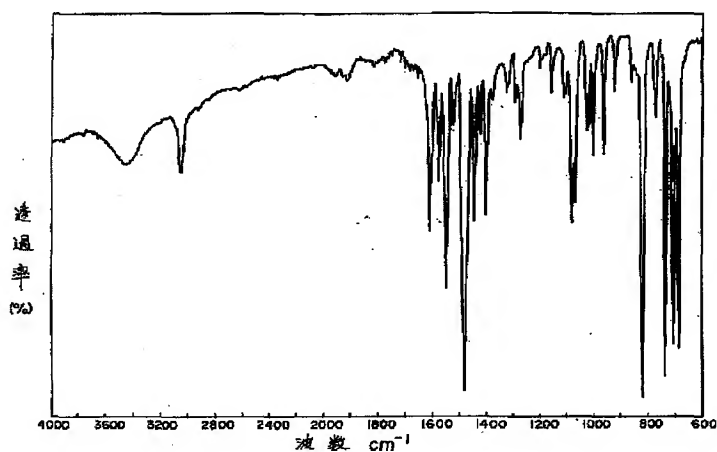
## \* 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のオキサジアゾール化合物〔一般式(I)においてA=フェニル, R=H〕の赤外線吸収スペクトル図(KBr錠剤法)である。

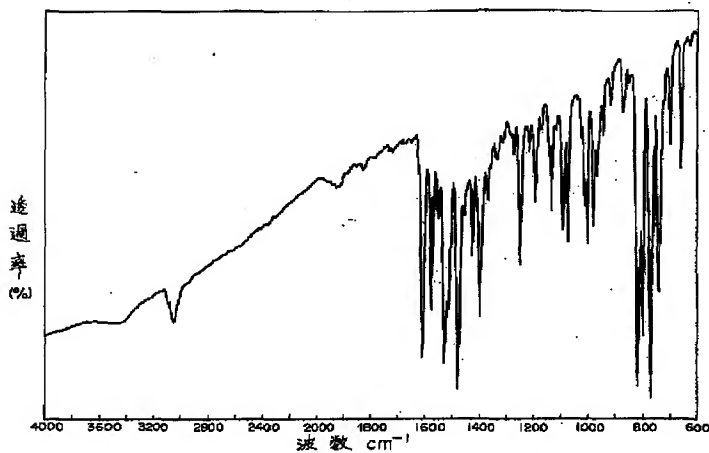
【図2】本発明のオキサジアゾール化合物〔一般式(I)においてA=1-ナフチル, R=H〕の赤外線吸収スペクトル図(KBr錠剤法)である。

【図3】本発明のオキサジアゾール化合物〔一般式(I)においてA=4-ビフェニルイル, R=H〕の赤外線吸収スペクトル図(KBr錠剤法)である。

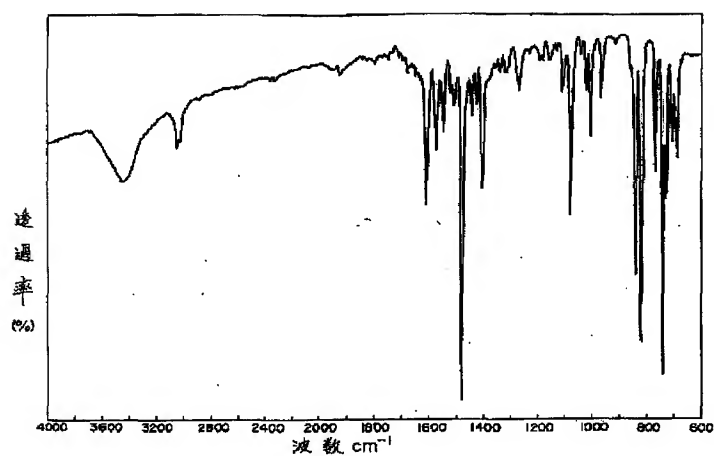
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>6</sup>

C 0 7 D 413/14

H 0 5 B 33/14

33/26

// C 0 9 K 11/06

(C 0 7 D 413/14

271:10

333:10)

(C 0 7 D 413/14

213:16

271:10)

(C 0 7 D 413/14

209:32

271:10)

(C 0 7 D 413/14

215:04

271:10)

(C 0 7 D 413/14

271:10

307:79)

識別記号

3 3 3

庁内整理番号

Z 9280-4H

F I

技術表示箇所